

# Identification des paramètres de diffusion d'humidité des matériaux composites à matrices organiques

## *Identification of moisture diffusion parameters in polymer matrix composites*

Hossein Ramezani Dana<sup>1</sup>, Annick Perronnet<sup>1</sup>, Sylvain Fréour<sup>1</sup>, Pascal Casari<sup>1</sup>, Frédéric Jacquemin<sup>1</sup>

<sup>1</sup> : Institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique – UMR CNRS 6183  
LUNAM, Université de Nantes, 37 Bd de L'Université – BP 406 44600 Saint Nazaire

E-mail : Hossein.Ramezani-Dana@univ-nantes.fr, Annick.Perronnet@univ-nantes.fr, Sylvain.Freour@univ-nantes.fr, Pascal.Casari@univ-nantes.fr, Frederic.Jacquemin@univ-nantes.fr

### Résumé

Dans ce travail, la diffusion d'humidité dans les polymères renforcés par fibres de verre a été étudiée par les deux approches théoriques et expérimentales. Les diffusivités de la résine pure et du composite unidirectionnel, contenant différentes fractions volumiques de fibres de verre, ont été identifiées par l'intermédiaire d'essais de vieillissement hygrothermiques. L'objectif principal de l'étude consiste à comparer les évolutions, en fonction de la fraction volumique de renforts, des coefficients de diffusion d'humidité, déduits des expériences, aux valeurs calculées par l'intermédiaire des relations de transition d'échelle disponibles dans la littérature.

### Abstract

In this work, moisture penetration in glass fiber reinforced polymers was investigated through both experiments and theoretical approaches. The diffusivities of the neat resin and those of unidirectional composite plates containing various glass fiber volume fractions have been identified through the analysis of hygro-thermal aging tests. The main aim of the present paper consists in comparing the evolutions, as a function of the fiber volume fraction, of the moisture diffusion coefficients deduced from experiments to the corresponding values, predicted by the many traditional scale transition relations available in the literature.

**Mots Clés :** coefficients de diffusion, identification, modèles de transition d'échelles

**Keywords :** diffusion coefficients, identification, scale transition models.

## 1. Introduction

Les applications des matériaux composites à matrice organique (CMO) sont très nombreuses [1-3]. Ces matériaux, lorsqu'ils sont exposés à un environnement humide, absorbent de l'humidité [4]. Ceci peut influencer sur le comportement mécanique du composite, notamment, entraîner une perte de rigidité et une diminution de la résistance mécanique [5]. De plus, les constituants des matériaux composites à matrice organique ne présentent pas le même coefficient de dilatation hygroscopique, ce qui a pour effet de générer des contraintes internes et dans certain cas, un endommagement à l'interface fibre/résine [6]. Dans la littérature, différentes approches ont été développées afin de prédire l'état mécanique du composite soumis à des sollicitations hygroscopiques [7,8]. La modélisation des états mécaniques du matériau composite soumis aux environnements humides est fortement dépendante de la cinétique de diffusion d'humidité [9]. Ainsi, la connaissance de la loi de diffusion d'humidité et du coefficient associé est indispensable à la modélisation. Les modèles de transitions d'échelles, présents dans la littérature, permettent de calculer le coefficient de diffusion d'humidité effectif d'un composite unidirectionnel dans les sens parallèle et transverse aux fibres, à partir du coefficient de diffusion d'humidité des constituants [10-14]. Dans cette étude, nous allons comparer la diffusivité transverse obtenue expérimentalement à la diffusivité transverse déduite de

différents modèles de transitions d'échelles. Afin d'atteindre cet objectif, des composites unidirectionnels contenant différentes fractions volumiques de fibres, ainsi que des échantillons de résine pure ont été élaborés. Leurs coefficients de diffusions transverses ont été identifiés par l'intermédiaire d'essais de vieillissement.

## 2. Elaboration et caractérisation des échantillons

### 2.1. Préparation des échantillons

Le composite réalisé se compose de fibres de verre de type E et d'une résine polyester ortho-phthalique (POLYLITE 420-73), qui polymérise à température ambiante. Les éprouvettes ont été fabriquées dans un moule métallique par moulage au contact. Plusieurs profilés composites, contenant différents taux de fibres ( $v_f$ ), ainsi qu'un profilé de résine pure, ont été élaborés. Les éprouvettes fabriquées ont une section de 63 mm × 6 mm et une longueur de 180mm (afin d'obtenir un rapport longueur/épaisseur relativement grand).

### 2.2. Détermination de la fraction volumique de fibres

Plusieurs études [14,15] montrent que la fraction volumique a un effet significatif sur le processus de diffusion de l'humidité. Ainsi, ce paramètre a également une très forte influence sur l'application numérique des modèles de transition d'échelle utilisés pour prédire le coefficient de diffusion transverse. Par conséquent, la détermination précise de la fraction volumique de fibre de verre pour chacune des éprouvettes élaborées est indispensable. Différentes techniques, présentées dans la littérature, permettent de déterminer cette fraction volumique. Parmi elles, on trouve l'analyse d'image, l'analyse dimensionnelle, la digestion à l'acide et la calcination [16-18]. Les trois méthodes que nous avons utilisées pour déterminer ce paramètre sont présentées dans le paragraphe suivant.

#### 2.2.1 Détermination de la fraction volumique par la méthode Analyse Dimensionnelle (A.D.)

L'observation de la microstructure des éprouvettes montre qu'il y a peu de porosités. Nous considérons donc que le volume total ( $V_t$ ) du composite est égal à la somme du volume occupé par les fibres de verre ( $V_f$ ), d'une part et par la résine ( $V_r$ ), d'autre part (1). De la même manière, la masse totale du composite ( $M_t$ ) est égale à la somme de la masse de fibre de verre ( $M_f$ ) et de la masse de la résine ( $M_r$ ) (2).

$$V_t = V_f + V_r \quad (\text{Eq. 1}) \quad M_t = M_f + M_r = \rho_f V_f + \rho_r V_r = \rho_t V_t \quad (\text{Eq. 2})$$

où le symbole  $\rho$  représente la masse volumique.

Sachant que la fraction volumique de fibre est décrite par l'équation suivante :

$$v_f = \frac{V_f}{V_t} = 1 - v_r = 1 - \frac{V_r}{V_t} \quad (\text{Eq. 3})$$

On peut la déterminer en fonction des masses volumiques, en combinant les équations (2) et (3).

$$v_f = \frac{\rho_t - \rho_r}{\rho_f - \rho_r} \quad (\text{Eq. 4})$$

Nous avons mesuré les dimensions et les masses des échantillons afin de déterminer la densité totale ( $\rho_t$ ). La densité de la résine ( $\rho_r$ ) a été déduite de l'analyse d'un lot d'échantillons de résine pure par la même méthode, alors que nous avons pris la valeur indiquée dans la littérature [19] pour la masse volumique des fibres de verre. Les résultats obtenus par cette méthode, sont fournis dans le tableau 1.

### 2.2.2 Détermination de la fraction volumique par la méthode Analyse d'Image (A.I.)

La fraction volumique de fibre de verre peut également être déterminée à partir de l'étude de la microstructure des échantillons par des méthodes d'analyse d'image. La section de chaque échantillon a été couverte par 30 micrographies réalisées à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB : CARL ZEISS-EVO40). Nous voyons sur la figure 1, un très bon contraste entre les fibres et la matrice. Ceci nous permet de déterminer le nombre de pixels associé aux fibres sur chaque micrographie et d'obtenir ainsi la concentration surfacique de fibres dans l'échantillon. Les résultats obtenus par cette méthode, que l'on désignera par la suite, par l'acronyme A.I. sont présentés dans le tableau 1. Malheureusement, les informations concernant l'échantillon N° 8 ne sont pas disponibles car la tranche destinée au MEB pour cet échantillon a été abimée. Les résultats obtenus par cette méthode sont cohérents avec les résultats obtenus par la méthode A.D. L'incertitude estimée, correspondant au taux de fibre déterminé par cette méthode, est relativement faible par rapport à l'incertitude associée à la méthode A.D.

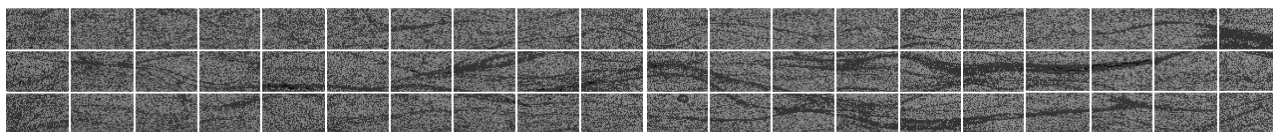


Figure 1 : Reconstitution de la section du profilé contenant 53,1% de fibre de verre à partir de 60 clichés.

### 2.2.3 Détermination de la fraction volumique par la Méthode Inverse (M.I.)

Comme le montre la littérature [20], la capacité maximale d'absorption d'humidité des matériaux composites ( $M_{\infty}$ ) renforcés par des fibres imperméables dépend de la masse à saturation de la résine pure ( $M_{\infty r}$ ) et de la fraction volumique de fibre correspondante (5) :

$$\frac{M_{\infty r}}{M_{\infty}} = \frac{\rho_t}{(1 - v_f) \rho_r} \quad (\text{Eq. 5})$$

Nous pouvons déduire la fraction volumique de fibre à partir de la densité mesurée et de la capacité maximale d'absorption d'humidité du composite et de la résine (6) :

$$v_f = 1 - \frac{\rho_t}{\rho_r} \frac{M_{\infty}}{M_{\infty r}} \quad (\text{Eq. 6})$$

Les fractions volumiques obtenues par cette méthode sont présentées dans le tableau 1.

## 2.3 Comparaisons et discussion

Les fractions volumiques de fibre de verre des éprouvettes varient de 35,5 % à 55,6 %.

N° de l'échantillon	A.D. $v_f$ (%)	A.I. $v_f$ (%)	M.I. $v_f$ (%)
1	40,2 ± 1,9	41,6 ± 1,7	43,4 ± 1,5
2	39,3 ± 1,6	40,6 ± 1,4	39,3 ± 1,5
3	38,5 ± 1,8	40,1 ± 1,9	46,7 ± 0,8
4	44,0 ± 2,4	45,2 ± 1,3	44,9 ± 1,5
5	46,9 ± 2,7	47,2 ± 1,5	43,9 ± 2,9
6	47,6 ± 2,3	49,2 ± 1,2	50,9 ± 1,7
7	53,4 ± 2,0	52,8 ± 1,4	55,9 ± 1,8
8	51,8 ± 2,5		53,4 ± 3,4
9	55,6 ± 2,0	53,4 ± 1,1	53,8 ± 3,4

Tableau 1 : fraction volumique de fibre de verre déterminée par les trois méthodes.

Les valeurs déterminées par les trois méthodes sont cohérentes pour la majorité des échantillons, à l'exception de l'échantillon N°3.

### 3. Vieillessement et identification

#### 3.1 Protocole de vieillissement

Les essais de vieillissement ont été effectués afin de caractériser les paramètres de diffusion de l'humidité dans les échantillons composites et de résine pure. Les sections coupées des échantillons ont été polies avec un papier de polissage (500 gr/si) et ensuite nettoyées avec de l'éthanol afin d'éliminer les résidus et poussières. Tous les échantillons ont été pesés avant d'être placés dans l'enceinte climatique conditionnée à température ambiante (23°C) et à 80 % humidité relative. Le suivi gravimétrique a été assuré au moyen de pesées régulières. Les pesées ont été réalisées à l'aide d'une balance électronique analytique, commercialisée par SARTORIUS, de résolution 0,1 mg. Le suivi gravimétrique de toutes les éprouvettes composites et de résine pure a permis d'analyser les cinétiques d'absorption d'humidité et d'identifier les paramètres de la loi du comportement diffusif de nos échantillons vis-à-vis de l'humidité.

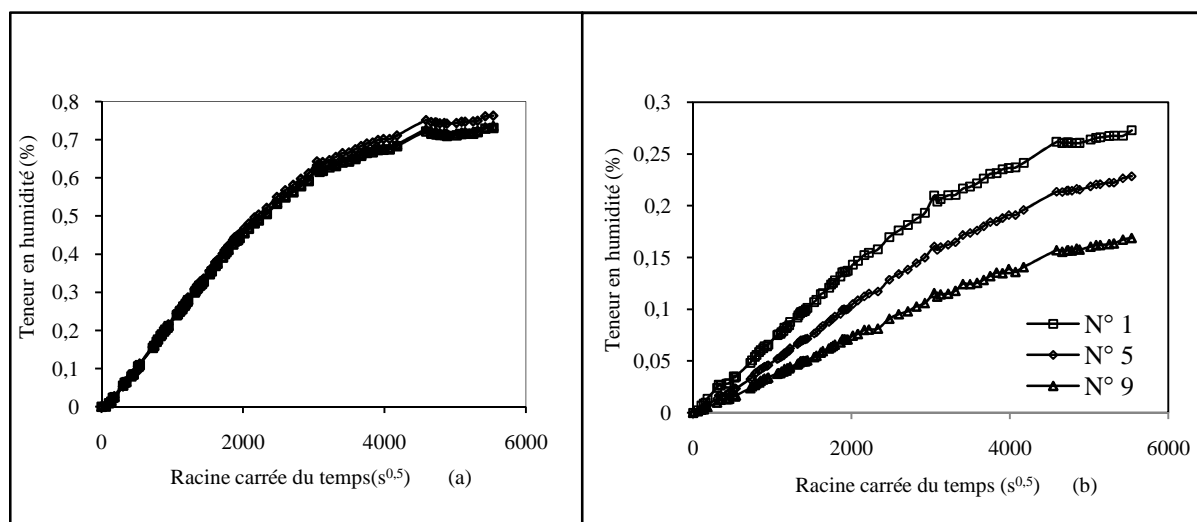


Figure 2: Courbes de suivi gravimétrique des trois échantillons de résine pure (a) et des échantillons composites N°1, N°5 et N°9.

La figure 2a représente les courbes de suivi gravimétrique des trois échantillons de résine pure, tandis que la figure 2b représente les courbes de suivi gravimétrique des échantillons composites N°1, N°5 et N°9 contenant respectivement 41,6 %, 47,2 % et 53,4 % de fibre. La figure 2a montre une bonne reproductibilité du phénomène de reprise en eau pour les échantillons de résine pure. La résine pure présente une loi de comportement diffusif d'allure Fickienne. On constate que les trois échantillons composites (Figure 2b) présentent une évolution linéaire pendant plusieurs mois, jusqu'à ce qu'un palier indiquant la saturation du processus de diffusion, soit atteint. On remarque également que la capacité maximale d'absorption d'humidité décroît de manière considérable quand le taux de fibre augmente. La capacité maximale d'absorption d'humidité des échantillons de résine pure est au moins trois fois plus importante que celle des échantillons composites.

#### 3.2 Identification des paramètres de diffusion

Les courbes de suivi gravimétrique des éprouvettes composites et de résine pure présentent une évolution linéaire et un palier indiquant la saturation du processus de diffusion, caractéristiques d'un comportement Fickien.

La loi de Fick (7) permet de prédire la distribution de l'humidité en fonction du temps et de l'espace.

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \text{div}(-D \overrightarrow{\text{grad}} c) \quad (\text{Eq. 7})$$

Où  $c$  est la teneur en eau et  $D$  le coefficient de diffusion.

Pour une plaque épaisse orthotrope, la diffusion tridimensionnelle de Fick, suivant les trois directions  $x$ ,  $y$  et  $z$ , est décrite par l'équation :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D_1 \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + D_2 \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} + D_3 \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \quad (\text{Eq. 8})$$

Où  $D_1$ ,  $D_2$  et  $D_3$  sont les coefficients de diffusion dans les directions  $x$ ,  $y$  et  $z$ .

En intégrant la solution de l'équation (8) par rapport au volume de la plaque (les dimensions  $L$ ,  $l$ , et  $e$  sont respectivement la longueur, la largeur et l'épaisseur de la plaque), on peut déterminer la teneur en eau  $M(t)$  absorbée par la plaque [21] :

$$\begin{aligned} \frac{M}{M_\infty} = & \left( 1 - \left( \frac{8}{\pi^2} \right)^3 \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1}{((2i+1)(2j+1)(2k+1))^2} \right) \\ & \times \exp \left( -\pi^2 t \left( D_1 \left( \frac{2i+1}{L} \right)^2 + D_2 \left( \frac{2j+1}{l} \right)^2 + D_3 \left( \frac{2k+1}{e} \right)^2 \right) \right) \end{aligned} \quad (\text{Eq. 9})$$

Où  $M_\infty$  est la teneur en eau à saturation.

L'identification des paramètres de diffusion est basée sur une comparaison entre la solution tridimensionnelle du modèle de Fick, rappelée ci-dessus, et le relevé expérimental de la variation de la masse des échantillons, au cours du processus de diffusion. En particulier, on identifie les valeurs des coefficients de diffusion et de la teneur en humidité à saturation de manière à minimiser l'écart quadratique  $q$  (10) entre les teneurs en humidité prédites par la solution analytique et celles déduites des relevés expérimentaux :

$$q = \sum_i [M(t_i) - M_i]^2 \quad (\text{Eq. 10})$$

Où  $M(t_i)$  est la teneur en humidité calculée au temps  $t_i$ , à l'aide de la solution analytique, et  $M_i$  est la teneur en humidité mesurée expérimentalement au temps  $t_i$ .

## 4. Méthodes d'identification

### 4.1 Identifications simultanées

Dans certains travaux, notamment l'étude de Kondo et Taki [15], le coefficient de diffusion d'humidité du composite unidirectionnel dans la direction parallèle à l'axe des fibres est considéré égal au coefficient de diffusion de la résine pure ( $D_1 = D_r$ ). En guise de première approche, nous avons identifié le coefficient de diffusion transverse ( $D_2$ ) et la capacité maximale d'absorption d'humidité ( $M_s$ ) pour tous les échantillons composites, sur la base de cette hypothèse. Nous avons identifié le coefficient de diffusion des cinq échantillons de résine pure afin de réduire le nombre des inconnues restant à identifier pour les échantillons composites. La moyenne de ces valeurs ( $5,23 \times 10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$ ) a été considérée en tant que coefficient de diffusion longitudinal ( $D_1$ ) pour les échantillons composites. D'autre part, la capacité maximale d'absorption d'humidité pour les cinq

échantillons de résine, obtenue par cette méthode est égale à 0,73 %. Nous avons identifié le coefficient de diffusion transverse ( $D_2$ ) et la capacité maximale d'absorption d'humidité ( $M_s$ ) pour tous les échantillons composites, en fixant le coefficient de diffusion longitudinal. Les résultats obtenus par cette méthode sont présentés dans le tableau 2.  $M_\infty$  a été identifiée afin de déterminer la fraction massique et la fraction volumique de fibre de verre des échantillons composites par l'intermédiaire de l'équation (6). Les résultats obtenus par cette méthode sont notés par l'acronyme M.I. dans le tableau 2.

#### 4.2 Identifications successives

La relation (5) peut être utilisée afin de déterminer la capacité maximale d'absorption d'humidité, à condition que la fraction volumique de fibre de verre des éprouvettes composites soit connue. Cette première étape peut être réalisée indépendamment de l'identification du coefficient de diffusion transverse. Une fois la capacité maximale d'absorption d'humidité connue, il est possible de déterminer le coefficient de diffusion transverse ( $D_2$ ) correspondant grâce à l'équation (9). Nous avons ainsi utilisé les fractions volumiques déterminées dans la section 2 pour obtenir  $M_\infty$  puis identifier  $D_2$  pour chacun de nos échantillons.

La figure 3 présente la comparaison entre les courbes expérimentales et celles simulées, à partir des paramètres de diffusion identifiés à l'aide des fractions volumiques de renfort obtenues par la méthode A.I. Cette comparaison concerne les échantillons N°2, et N°9 contenant, respectivement, 41 %, et 53 % de fibres de verre. La même méthode a été utilisée pour toutes les éprouvettes composites et leurs résultats ont été notés sous les acronymes A.I. et A.D. associés à la méthode de détermination de  $v_f$ .

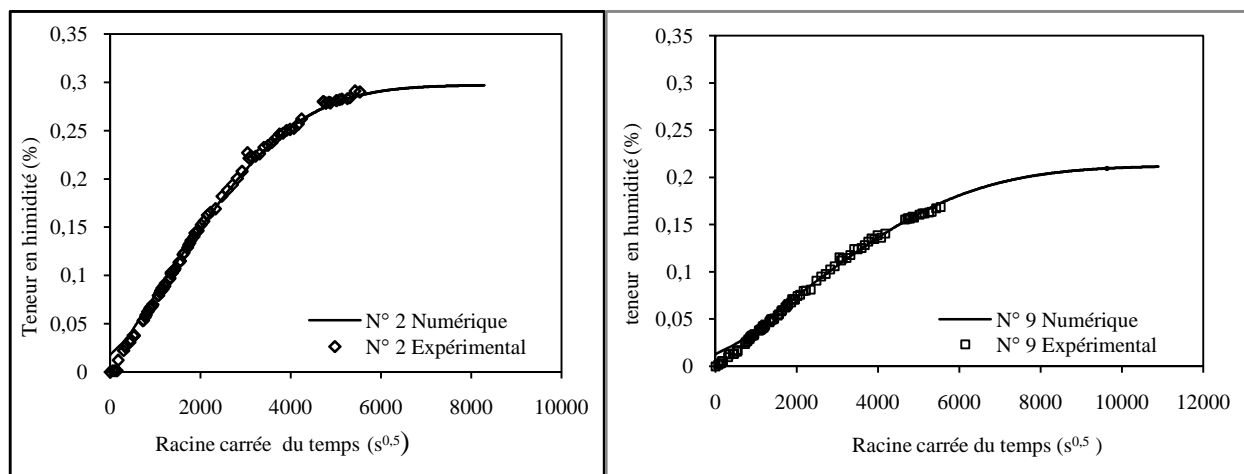


Figure 3: Confrontation des courbes expérimentales et numériques pour les échantillons N°2 et N°9.

N° de l'échantillon	$M_s$ (%) (A.D.)	$M_s$ (%) (A.I.)	$M_s$ (%) (M.I.)	$D_2 \cdot 10^{-7}$ (mm <sup>2</sup> /s) (A.D.)	$D_2 \cdot 10^{-7}$ (mm <sup>2</sup> /s) (A.I.)	$D_2 \cdot 10^{-7}$ (mm <sup>2</sup> /s) (M.I.)
1	0,30±0,01	0,29 ± 0,01	0,28 ± 0,01	2,59 ± 0,05	2,85 ± 0,05	3,23 ± 0,20
2	0,31±0,01	0,30 ± 0,01	0,31 ± 0,01	2,93 ± 0,06	3,21 ± 0,07	2,93 ± 0,22
3	0,31±0,02	0,30 ± 0,02	0,25 ± 0,01	1,99 ± 0,06	2,22 ± 0,07	3,56 ± 0,19
4	0,27±0,02	0,26 ± 0,01	0,27 ± 0,01	2,05 ± 0,04	2,21 ± 0,04	2,17 ± 0,26
5	0,25±0,02	0,25 ± 0,01	0,27 ± 0,02	2,07 ± 0,06	2,11 ± 0,06	1,69 ± 0,39
6	0,25±0,02	0,24 ± 0,01	0,23 ± 0,01	1,76 ± 0,04	1,96 ± 0,04	2,22 ± 0,22
7	0,21±0,01	0,22 ± 0,01	0,20 ± 0,01	1,81 ± 0,04	1,74 ± 0,04	2,20 ± 0,28
8	0,22±0,02	-	0,21 ± 0,02	1,62 ± 0,04	-	1,74 ± 0,36
9	0,20±0,01	0,21 ± 0,01	0,21 ± 0,02	1,64 ± 0,04	1,40 ± 0,04	1,44 ± 0,42

Tableau 2 : Paramètres de diffusion d'humidité obtenus selon les différentes méthodes d'identification.

On constate, en croisant les informations contenues dans les tableaux 1 et 2, que le coefficient de diffusion transverse, déterminé par toutes les méthodes, diminue quand la fraction volumique augmente. Les incertitudes sur les résultats obtenus par les méthodes A.D. et A.I. diminuent significativement en comparaison des résultats obtenus par la méthode M.I. Par conséquent, la détermination préalable de la capacité maximale d'absorption d'humidité améliore la précision de l'identification numérique. Sur la figure 3, on observe une très bonne cohérence entre la courbe expérimentale et la courbe prédite par le modèle à partir des valeurs de  $M_s$  et de  $D_2$  identifiées. Ceci montre que la méthode d'identification donne une très bonne estimation de  $M_s$  et  $D_2$  pour ces échantillons. Il faut noter que la simulation considérée, permet de prédire la capacité maximale d'absorption d'humidité des échantillons sous vieillissement avant d'atteindre le palier de saturation.

La figure 4 récapitule les valeurs des coefficients de diffusion et les incertitudes associées pour les différentes méthodes d'identification.

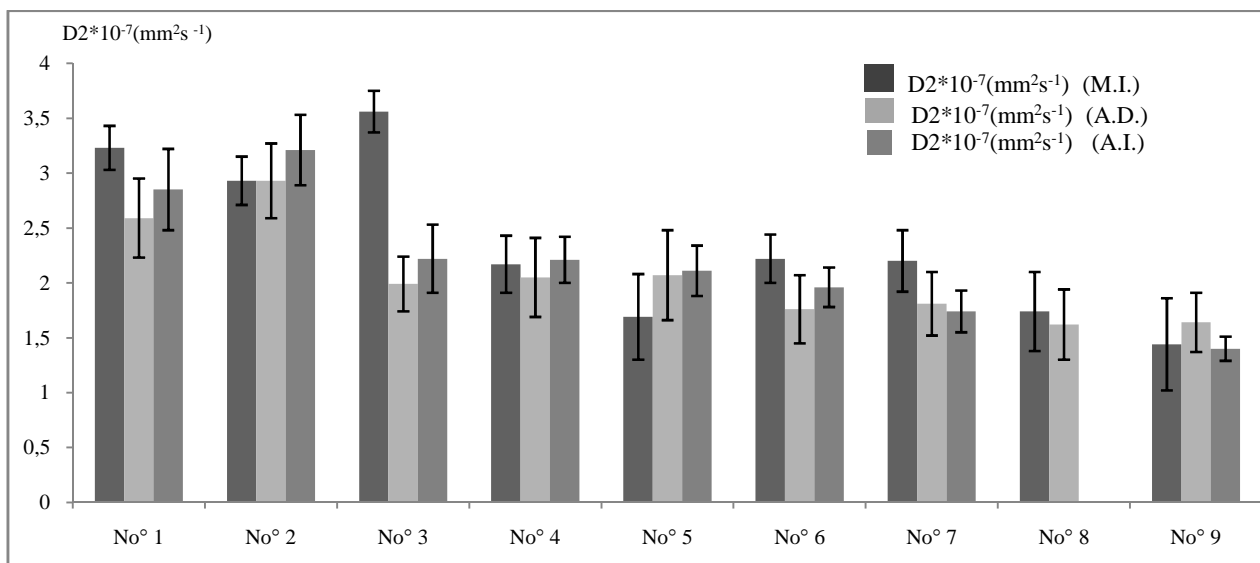


Figure 4 : Comparaison des coefficients de diffusion transverse ( $D_2$ ) identifiés par les différentes méthodes.

A l'exception de l'échantillon N°3, les coefficients de diffusion identifiés, par toutes les méthodes, sont proches. Dans le cas de l'échantillon N° 3, le coefficient de diffusion identifié, par la méthode inverse M.I. s'écarte significativement des coefficients de diffusions identifiés par les méthodes A.D. et A.I. Sur le tableau 1, on a constaté que, pour cet échantillon, la capacité maximale d'absorption d'humidité obtenue par la méthode M.I. était également différente des valeurs obtenues par les autres méthodes.

#### 4.3 Comparaison des résultats identifiés avec les prédictions de modèles de transition d'échelles

L'application des modèles de transition d'échelle est très répandue. Ils permettent de prédire le comportement diffusif effectif à partir des paramètres de diffusion des constituants. Dans la présente étude, différentes relations de transition d'échelle sont considérées afin de déterminer la diffusivité transverse effective pour les composites unidirectionnels élaborés. Les relations fondamentales représentant ces modèles sont récapitulées dans le tableau 3.

Nous allons calculer le coefficient de diffusion transverse prédit par l'intermédiaire de ces différents modèles, en fonction de la fraction volumique de fibres et le comparer avec nos résultats expérimentaux.

Méthodes	Coefficient de diffusion effectif	
<b>Halpin-Tsai</b> [23]	$D_1 = v_f D_f + (1 - v_f) D_r = (1 - v_f) D_r$	$D_2 = D_r \frac{1 + \zeta \eta v_f}{1 - \zeta \eta v_f} \quad \eta = \frac{(D_f/D_r) - 1}{(D_f/D_r) + \zeta} \quad \zeta = 1$ $D_2 = D_r \left( \frac{1}{1 + v_f} \right) \quad D_f = 0$
<b>Shen - Springer</b> [10]	$D_2 = D_r \left( 1 - 2 \sqrt{\frac{v_f}{\pi}} \right)$	
<b>Springer - Tsai</b> [22]	$D_2 = D_r \left( \frac{1 - 2 \sqrt{\frac{v_f}{\pi}}}{1 - v_f} \right)$	
<b>Shirrel - Halpin</b> [12]	$D_2 = D_r \left( \frac{1}{1 + v_f} \right)$	
<b>Rayleigh</b> [11]	$D_2 = D_r \frac{1 - v_f - 0,3058 v_f^4}{(1 + v_f - 0,3058 v_f^4)(1 - v_f)}$	
<b>Woo - Piggott</b> [14]	$D_2 = \frac{D_r}{1 - v_f} \left[ \frac{2}{\sqrt{1 - \frac{4v_f}{\pi}}} * \tan^{-1} * \frac{1 + 2 \sqrt{\frac{v_f}{\pi}}}{1 - 2 \sqrt{\frac{v_f}{\pi}}} - \frac{\pi}{2} + 1 - 2 \sqrt{\frac{v_f}{\pi}} \right]$	

Tableau 3 : Relations d'homogénéisation pour les coefficients de diffusion effectifs.

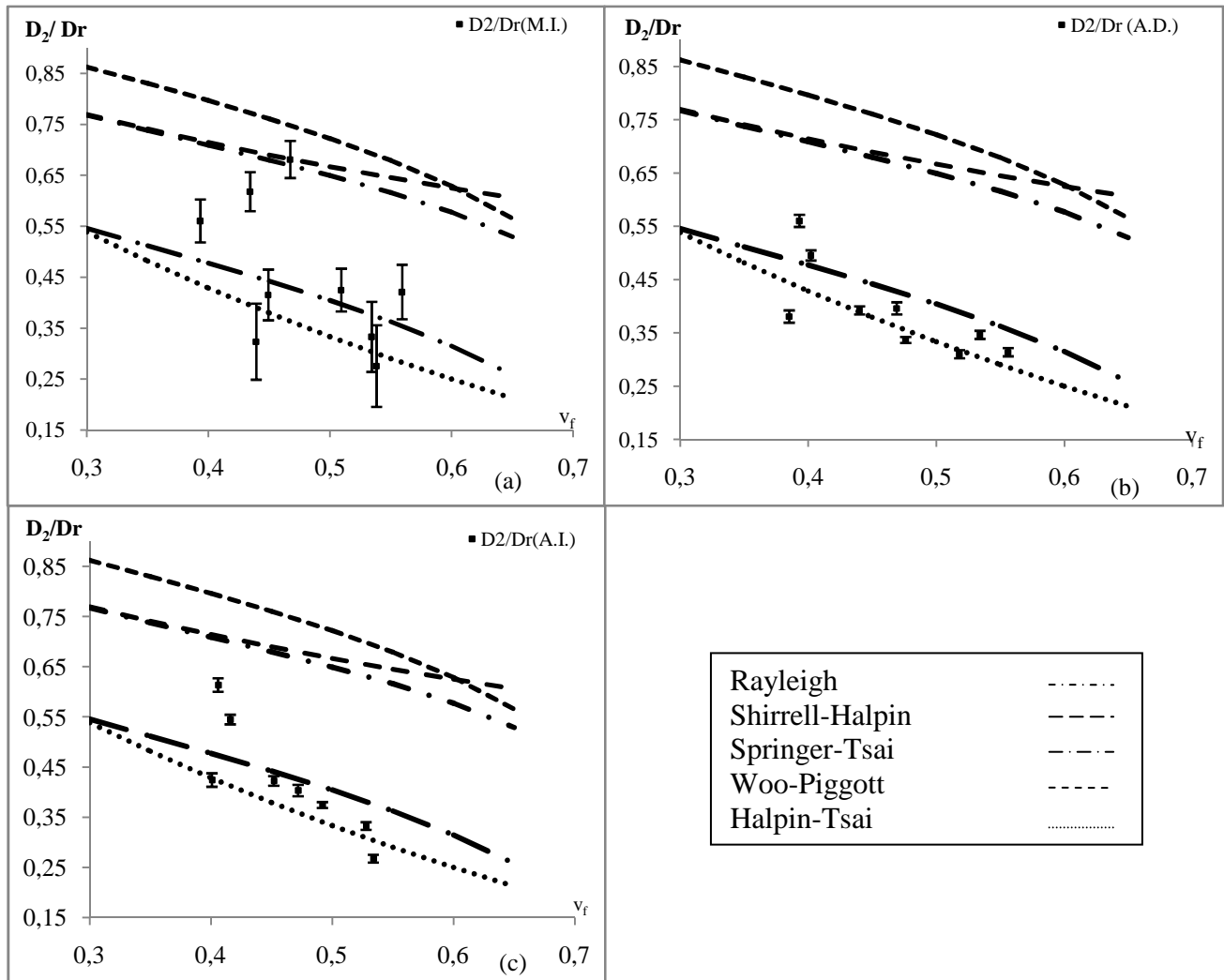


Figure 5 : Comparaison des coefficients de diffusion transverse identifiés par les méthodes M.I. (a), A.D. (b) et A.I. (c) aux valeurs prédites par différentes méthodes d'homogénéisation.



Les figures 5a, 5b et 5c montrent les évolutions, en fonction de la fraction volumique de fibre, des coefficients de diffusion transverse déduits des modèles de transition d'échelles et des approches expérimentales M.I., A.D. et A.I.

Les incertitudes sur le coefficient de diffusion transverse déduit par la méthode M.I. (figure 5a) sont relativement élevées, en comparaison des résultats obtenus par les méthodes A.D. et A.I. (figure 5b et 5c). Sur la figure 5a, nous constatons que les valeurs du coefficient de diffusion transverse obtenues par la méthode A.D. ne sont pas cohérentes avec les comportements prévus par les modèles théoriques. Ceci montre que l'identification simultanée de plusieurs paramètres de la solution tridimensionnelle du modèle de Fick n'est pas assez robuste. En revanche, en déterminant la capacité maximale d'absorption d'humidité séparément, avant l'identification de  $D_2$ , nous obtenons des résultats plus cohérents avec les résultats théoriques (figures 5b et 5c).

## 5. Conclusions

Dans cette étude, le comportement diffusif des composites unidirectionnels, à résine polyester ortho-phthalique renforcés par des fibres de verres, a été étudié. Afin de vérifier l'influence de la fraction volumique de fibre de verre sur le phénomène de reprise en eau, nous avons élaboré plusieurs éprouvettes composites contenant différents taux de fibre (entre 35 % et 60 %).

Pour déterminer les fractions volumiques de fibre ( $v_f$ ) des échantillons, nous avons employé trois méthodes qui conduisent à des résultats cohérents. Le suivi gravimétrique, pour des éprouvettes composites et de résine pure, a été mené afin de suivre les cinétiques d'absorption d'humidité. Les paramètres de diffusion d'humidité ont été identifiés en minimisant l'écart quadratique entre la solution analytique du modèle de Fick et le relevé expérimental de la variation de la masse des échantillons, au cours du processus de diffusion. Différentes méthodes d'identification ont été proposées dans le cadre de cette étude. Dans un premier temps, la capacité maximale d'absorption d'humidité et le coefficient de diffusion transverse ont été identifiés simultanément. Dans un deuxième temps, la capacité maximale d'absorption d'humidité a été déterminée, au préalable, par l'intermédiaire de  $v_f$  et a permis d'identifier ensuite le coefficient de diffusion transverse. Les incertitudes associées aux coefficients de diffusion transverse diminuent significativement en minimisant le nombre d'inconnues dans la solution tridimensionnelle du modèle de Fick. L'évolution du coefficient de diffusion transverse, prédite par l'intermédiaire des différents modèles de transition d'échelles, en fonction de la fraction volumique de fibres, a été calculée, puis comparée de façon satisfaisante aux résultats issus des relevés expérimentaux.

## Références

- [1] C. SOUTIS, « Fibers reinforced composites in aircraft construction », *Progress in Aerospace Sciences*, Vol. 41, pp. 143-151, 2005.
- [2] G. MARSH, « FRP has advantages for light marine structures », *Reinforced Plastics*, Vol. 40, pp. 50-54, 1996.
- [3] L.C. HOLLAWAY, « The evolution of and the way forward for advanced polymer composites in the civil infrastructure », *Construction and Building Materials*, Vol. 17, pp. 365-378, 2003.
- [4] G.S. SPRINGER, « Environmental Effects on Composites Material », *Technomic Publishing Co., Westport, Connecticut*, Vol. 1 1981, Vol. 2 1984, Vol. 3 1988.
- [5] R. SELZER, K. FRIEDRICH, « Mechanical properties and failure behavior of carbon fibers-reinforced polymer composites under the influence of moisture », *Composites Part A*, Vol. 28A, pp. 595-604, 1997.
- [6] Y.J. WEITSMAN, M. ELAHI, « Effects of Fluids on the Deformation, Strength and Durability of Polymeric Composites – An Overview », *Mechanics of Time-Dependent Materials*, Vol. 4, pp. 107-126, 2000.
- [7] R. GOPALAN, R.M. RAO, B. DATTA GURU, « Diffusion Studies on Advanced Fibers Hybrid Composites, *Journal of Reinforced Plastics and Composites* », Vol. 5, pp. 51-61, 1986.
- [8] F. JACQUEMIN, A. VAUTRIN, « A closed-form solution for the internal stresses in thick composite cylinders induced by cyclical environmental conditions », *Composite Structures*, Vol. 58, pp. 1-9, 2002.
- [9] A. FAHMY, J.C. HURT, « Stress Dependence of Water Diffusion in Epoxy Resin », *Polymer Composites*, Vol. 1, pp. 77-80, 1980.
- [10] C.H. SHEN, G.S. SPRINGER, « Moisture Absorption and Desorption of Composite Materials », *Journal of Composite Materials*, Vol. 10, pp. 2-20, 1976.
- [11] L. RAYLEIGH, « On the Instability of Cylindrical Fluid Surfaces », *Philosophical Magazine*, Vol. 34(207), pp. 177-180, 1892.
- [12] C.D. SHIRELL, J. HALPIN, « Moisture Absorption and Desorption in Epoxy Composite Laminates », *Proceeding of the Composites Materials: Testing and Design (Fourth Conference)*, ASTM STP 617 (American Society for Testing and Materials), pp. 514-528, 1977.
- [13] J.M. AUGL, A.E. BERGER, « Moisture effect on carbon fiber epoxy composites », *Proceedings from the 8<sup>th</sup> SAMPE Technical Conference, Society for the Advancement of Material and Process Engineering (SAMPE)*, Vol. 8, pp. 383-427, 1976.
- [14] M. WOO, M.R. PIGGOTT, « Water Absorption of Resins and Composites: IV. Water Transport in Fiber Reinforced Plastics », *Journal of Composites Technology and Research*, Vol. 10, pp. 20-24, 1988.
- [15] K. KONDO, T.TAKI, « Environmental effects on composite materials », *Springer G.S. Technomic*, 1984.
- [16] R.E. ALLRED, N.H. HALL, « Volume fraction determination of Kevlar 49/Epoxy composites », *Polymer engineering and science*, Vol. 19(13), pp. 907-909, 1979.
- [17] P. GREEN « Fibers volume fraction determination of carbon-epoxy composites using an acid digestion bomb », *Journal of materials science letters*, Vol. 10, pp. 1162-1164, 1991.
- [18] B.S. YE, A.L. SVENSON, L.C. BANK, « Mass and volume fraction properties of pultruded glass fibers-reinforced composites », *Composites*, Vol. 26(10), pp. 725-731, 1995.
- [19] C.T. HERAKOVITCH « Mechanics of Fibrous Composites », *John Wiley and Sons Inc., New York.*, 1998.
- [20] G. LOOS, G.S. SPRINGER, « Moisture absorption of polyester-E glass composites », *Journal of Composite Materials*, Vol. 14, pp. 142-154, 1980.
- [21] J. CRANK, « The mathematics of diffusion », *Second Edition, Oxford*, 1967.
- [22] G.S. SPRINGER, S.W.TSAI « Thermal conductivities of unidirectional materials », *Journal of Composite Materials*, Vol. 1, pp. 166-173, 1967.
- [23] J.C. HALPIN, J.L. KARDOS, « The Halpin-Tsai equations: A review, » *Polymer Engineering and Science*, Vol. 16, pp. 344-352, 1976.